

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**



## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

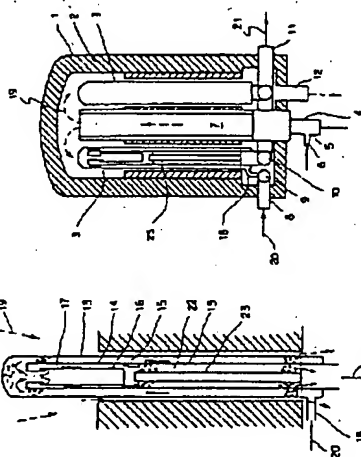
(11) Publication number: **04170301 A**(43) Date of publication of application: **18.06.92**

(51) Int. Cl.

**C01B 3/38****C01B 3/48****// C10L 3/06****H01M 8/06**(21) Application number: **02298266**(71) Applicant: **TOSHIBA CORP**(22) Date of filing: **02.11.90**(72) Inventor: **MIURA YOSHIHARU****(54) FUEL REFORMER****(57) Abstract:**

**PURPOSE:** To miniaturize the above device and to effectively utilize generated heat by providing a reforming catalyst layer in the outside tube of double tube type reaction tubes and providing a heat exchange layer and a CO denaturing catalyst layer in the inside tube.

**CONSTITUTION:** Gaseous raw materials 20 formed by mixing steam with gaseous hydrocarbon are preheated and are admitted from an inlet 8 to the bottom end of the reaction tubes 3 and are made to flow upward in the reforming catalyst layer 15. On the other hand, a combustion gas 19 of  $\sim 1000^{\circ}\text{C}$  is sent from a riser pipe 7 to the upper part of a housing container 1 and is moved downward around the reaction tubes 3 to heat the gaseous raw materials 20 via the outside tube 13, by which the gaseous raw materials are changed to about  $800^{\circ}\text{C}$  gas essentially consisting of hydrogen and CO. This gas is sent to an annular regenerating path 17 consisting of the inside tube 14 and a plug tube 16 and is subjected to the heat exchange with the gaseous raw materials 20 to drop the temp. of the gaseous raw materials down to  $400$  to  $550^{\circ}\text{C}$  prescribed temp. The gaseous raw materials are then sent to the denaturing catalyst layer 22 having a regulating pipe 23 for regulating the catalyst quantity and flow rate to lower the content of the CO down to the concn. at which the CO does not act as a catalyst poison of the electrode catalyst of a fuel battery. The reformed gas 21 is obtd. from a gas outlet 11.



## ⑫ 公開特許公報(A) 平4-170301

⑪ Int. Cl.<sup>3</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 平成4年(1992)6月18日

C 01 B 3/38

9041-4G

3/48

9041-4G

// C 10 L 3/06

R

9062-4K

C 10 L 3/00

A

H 01 M 8/06

6958-4H

審査請求 未請求 請求項の数 2 (全5頁)

⑭ 発明の名称 燃料改質器

⑮ 特 願 平2-298266

⑯ 出 願 平2(1990)11月2日

⑰ 発 明 者 三 浦 芳 春 神奈川県横浜市鶴見区末広町2-4 株式会社東芝京浜事業所内

⑱ 出 願 人 株 式 会 社 東 芝 神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

⑲ 代 理 人 弁 理 士 須 山 佐 一

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

燃料改質器

## 2. 特許請求の範囲

(1) 内部に改質触媒層が設けられた外管と内管よりなる二重管式反応管を有する燃料改質器において、前記内管の内部を上下に区分し、該上半部をプラグ管を設けた再生バスよりなる再生セクション、該下半部を一酸化炭素変成触媒を充填した変成触媒層よりなる変成セクションとして構成したことを特徴とする燃料改質器。

(2) 前記変成触媒層の中心に調整管を設けたことを特徴とする請求項1記載の燃料改質器。

## 3. 発明の詳細な説明

〔発明の目的〕

(産業上の利用分野)

本発明は、炭化水素ガスに水蒸気を混合したガス(以下、原料ガスと称する)を燃焼ガスによって加熱し、触媒を用いた改質反応により水素を主成分とするガス(以下、改質ガスと称する)を

生成する燃料改質器に係り、特に、燃料電池発電システムに使用するのに適した燃料改質器の改質反応管(以下、反応管と称する)の機能の複合化により、燃料電池発電システムの簡素化をなす燃料改質器に関する。

(従来技術)

燃料電池発電システムは、一般に燃料電池本体と上記燃料改質器と電力変換装置、制御装置および多くの熱交換器類や反応器によって構成されており、非常に複雑なシステムである。

本発明の対象である燃料電池発電システムの燃料改質器については、一般的に二重管式反応管が採用されている。その一例を、第3図および第4図に示す。以下、本図を用いて、その構成および機能の概略を説明する。

内面に適当な厚さの断熱材2を施した収納容器1の下部中央に、バーナ空気入口5およびバーナ燃料入口6を付属するバーナ4が設けられ、バーナ4の上部にはライザー管7が立設されている。

また、ライザー管7を囲むように複数の反応管

3が配設され、当該反応管3は、外管13と内管14からなる二重管構造となっており、外管13と内管14の間には粒状の改質触媒が充填されて改質触媒層15が形成されている。また、内管14の内部にはプラグ管16が設けられ、内管14とプラグ管16の間には、再生パス17と称するガス通路が形成されている。

また、収納容器1の下部には、容器壁を貫通して原料ガス入口8、改質ガス出口11および排ガス出口12が設けられている。さらに、原料ガス入口8は収納容器1の内部において原料ガス分配管9に通じ、さらに、分配枝管18を介して反応管3の下端に連結している。

次に、ガスの流れを順に説明する。バーナ空気入口5およびバーナ燃料入口6から供給されたバーナ空気およびバーナ燃料は、バーナ4で燃焼して1000℃以上の高温の燃焼ガス19となり、ライザー管7内を上昇する。さらに、燃焼ガス19は収納容器1の上端部で放射状に反転して流れ、複数の反応管3の周囲を長さ方向に沿って下向きに

流動する。

その際、燃焼ガス19は、反応管3の内部を流れる原料ガス20と熱交換し、徐々に温度が降下する。そして、所定の温度まで下がった燃焼ガス19は排ガスとなって排ガス出口12から器外に流出する。

一方、炭化水素ガスに水蒸気を混合した原料ガス20は、図示しない原料ガス予熱器によって所定の温度に予熱され、原料ガス入口8より収納容器1の下部に流入し、原料ガス分配管9および分配枝管18を介して反応管3の下端に流入する。次に、原料ガス20は、反応管3の下部で上向きに流れを転じ、改質触媒層15内を反応管3の長さ方向に沿って流動する。

その際、原料ガス20は、反応管3の外部を流れる高温の燃焼ガス19と外管13を介して熱交換して熱せられ、徐々に温度が上昇する。そして、触媒作用によって吸熱反応であるところの水蒸気改質反応が起こり、改質触媒層15の上端に達するまでに約800℃の水素と一酸化炭素を主成分と

改質ガス21に変化する。さらに、改質ガス21は、反応管3の上端で反転し、内管14によって形成されるリターンパス17を下向きに流動する。ここで高温の改質ガス21は、内管14を介して改質触媒層15内を流動する原料ガス20に熱を供給する。尚、この作用は再生機能と呼ばれ、高温の改質ガス21の熱量を有効に利用するものである。

そして、約400～550℃の所定の温度に降下した改質ガス21は、改質ガス集合管10を経て改質ガス出口11より器外に排出され、一酸化炭素変成器24に導かれる。一酸化炭素変成器24において改質ガス21は、一酸化炭素濃度を低減し、図示しない種々の器機を経由して燃料電池本体に導かれる。

(発明が解決しようとする課題)

以上のような構成および機能を有する従来の燃料改質器を備えた燃料電池発電システムにおいては、多くの器機の中で燃料改質器が最も大きな器機であり、したがってシステム全体に占めるス

ペースやコストの割合も大きくなっている。

このため、過去においても、構造上の様々な工夫や改質性能の向上、およびシステムの改良によって少しでも小型にするような努力が払われてきたが、最近のコンパクト化に対する要求は一層強いものがある。

次に、燃料電池発電システムにおけるもう一つの特徴は、燃料改質器の生成した改質ガス21には約5～10%もの大量の一酸化炭素が含まれているために、そのまま燃料電池に送ることができないということである。一酸化炭素は燃料電池の電極触媒の触媒毒となって寿命を著しく低下させるため、一酸化炭素を多く含むガスは電池の燃料ガスとして不適当である。

したがって、通常の燃料電池発電システムにおいては、燃料改質器の後段に別置の一酸化炭素変成器24を設置して、改質ガス21中の一酸化炭素を燃料電池が許容する濃度まで低減させている。この理由により、一酸化炭素変成器24は燃料電池発電システムでは、燃料改質器に並ぶ必要不可

欠な重要機器のひとつとなっている。

しかしながら、一酸化炭素変成器24のような類の機器を必要とすることが、燃料電池発電システムの複雑さの一つの要因であり、システムの簡素化やコンパクト化を妨げる原因となっていることは否めない。

本発明は、上記の課題を解決するために考案されたものであり、その目的とするところは、燃料改質器の構造、特に反応管の構造の改良によって、燃料改質器の機能の複合化を図り、もって燃料電池発電システムの簡素化に寄与する燃料改質器を提供することにある。

#### 〔発明の構成〕

##### （課題を解決するための手段）

上記の目的を達成するために、本発明は次の手段を講じている。すなわち、外管および内管により従来と同様な二重管式反応管を構成し、内管内の上半部にはプラグ管を設けて再生バスを形成するとともに、下半部には一酸化炭素変成触媒を充填して変成触媒層を形成し、その中心部には調

を参照して説明する。第1図は本発明を適用した燃料改質器の全体構成を示し、第2図は反応管の詳細を示している。

第1図および第2図において、第3図および第4図と同一符号で示す部分はその構成が同様であるから説明を省略する。

外管13および内管14により従来と同様な二重管を構成し、その間を改質触媒層15となす。内管14の内側の空間を上半部の再生セクション、下半部の変成セクションに区分し、再生セクションにはプラグ管16を設けて再生バス17を形成し、変成セクションには一酸化炭素変成触媒を充填して変成触媒層22を形成している。また、変成触媒層22の中心部には調整管23が立設されている。

次に、本発明の実施例の作用を説明する。

なお、従来と同様の作用を有する部分はその説明を省略する。

1000℃以上の高温の燃焼ガス19は、ライザー管7を経て収納容器1の上部から反応管3の周囲

壁管を設ける。機能的に、該上半部を再生セクション、下半部を変成セクションと称す。

#### （作用）

上記の手段によって下記の作用が得られる。

すなわち、再生セクションにおいて、再生バスの作用により、高温の改質ガスの熱量を内管を介して原料ガスに供給して従来と同様の再生機能を保持するとともに、一酸化炭素変成触媒に供給するのに通した温度まで改質ガスを冷却する。

一方、変成セクションにおいて、変成触媒層の作用により改質ガスの一酸化炭素の濃度を低減するから、後段の一酸化炭素変成器が不要、もしくは著しく小形化することが可能である。

さらに、一酸化炭素変成反応は発熱反応であるから、上記の改質ガスの処理過程で発生する熱量が内管を介して改質触媒層に伝えられる。したがって、改質反応の熱源としてのバーナの燃料を節約することができる。

#### （実施例）

以下、本発明の実施例を第1図および第2図

を長さ方向に沿って下向きに流動する。その際、燃焼ガス19は外管13を介して反応管3の内管を流れる原料ガス20と熱交換して徐々に温度が降下する。そして排ガスとなって収納容器1の下端部の排ガス出口12から流出する。

一方、炭化水素ガスに水蒸気を混合した原料ガス20は、原料ガス入口8より原料ガス分配管9および分配枝管18を経由して反応管3の下端に流入し、改質触媒層15の中を上向きに流動する。この際、原料ガス20は、外管13を介して外部を流れる燃焼ガス19および内管14を介して改質ガス21とそれぞれ熱交換して徐々に温度が上昇する。そして、触媒の作用により水蒸気改質反応が起こり、改質触媒層15の上端に達するまでには約800℃の水素と一酸化炭素を主成分とする改質ガス21に変化する。

次に、改質ガス21は、反応管3の上端部で反転して内管14とプラグ管16で構成される環状の再生バス17に流入し、下方に流れる。再生バス17を通過する間に、高温の改質ガス21の保

有する熱量は、内管14を介して改質触媒層15を流れる原料ガス20に伝えられ、改質ガス21自身は所定の温度まで降下する。

このように、本実施例においても、吸熱反応であるところの水蒸気改質反応の熱源として、高温の改質ガス21の保有する熱量の有効利用が図られており、従来の改質器と同様の再生機能が備えられている。

さらに、所定の温度が下がった上記の改質ガス21は、内管14の下半部に設けられた変成触媒層22に流入し、下向きに流動する。その際、変成触媒の作用により、改質ガス21中に含まれた約10%の一酸化炭素は、水素と二酸化炭素に変化する。そして、下端に達するまでに一酸化炭素の含有率は、燃料電池に導入するのに適当な濃度もしくは著しく低い濃度まで低下する。

なお、調整管23は変成触媒層22に充填する変成触媒の充填量の調整や流速の調整の役割を持っており、この寸法や形状を変えることによって、性能を十分に引き出す最適な設計が可能になる。

このように、本実施例の改質器は、従来の改質器の持つ改質機能と一酸化炭素変成器24の持つ変成機能を併せ持っており、二種類の機器の機能を有する複合機器となっている。

なお、一酸化炭素の変成反応は、発熱反応であるため、上述した変成触媒層22での反応過程で発生した熱量は、内管14を介して改質触媒層15を流れる原料ガス20に伝達され、水蒸気改質反応の熱源として有効に利用される。したがって、水蒸気改質反応の熱源としてのバーナ4の燃料を節約することができ、発電プラントの熱効率の向上に大きく寄与する。

#### 【発明の効果】

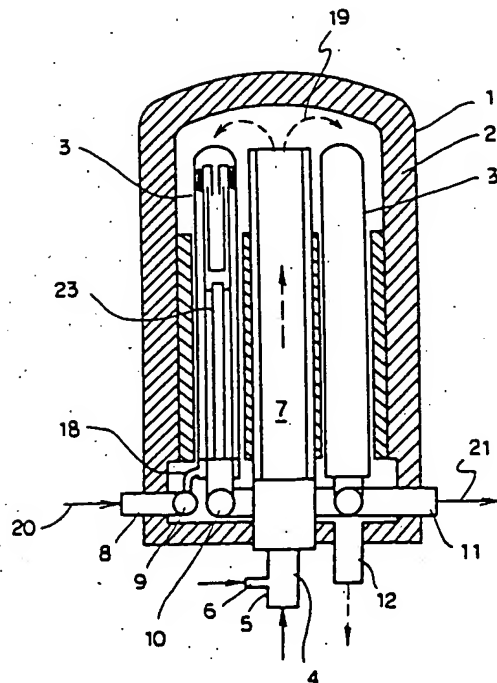
以上説明したように、本発明の燃料改質器によれば、改質ガスに含まれる一酸化炭素の変成機能を備えているから、一酸化炭素変成器が不要もしくは著しく小形化が可能になる利点を有するのみならず、反応に伴う発生熱の有効利用を図っているから、燃料電池発電システムの簡素化および高効率化が達成されるという優れた効果を奏する。

#### 4. 図面の簡単な説明

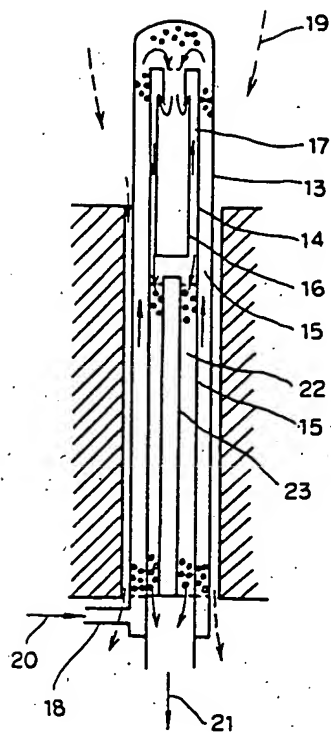
第1図は本発明に係る燃料改質器の全体構成を示す断面図、第2図は本発明による反応管の詳細を示す断面図、第3図は従来の燃料改質器を示す断面図、第4図は従来の反応管の一例を示す断面図である。

- 3 …… 反応管
- 13 …… 外管
- 14 …… 内管
- 15 …… 改質触媒層
- 16 …… プラグ管
- 17 …… 再生パス
- 22 …… 変成触媒層
- 23 …… 調整管

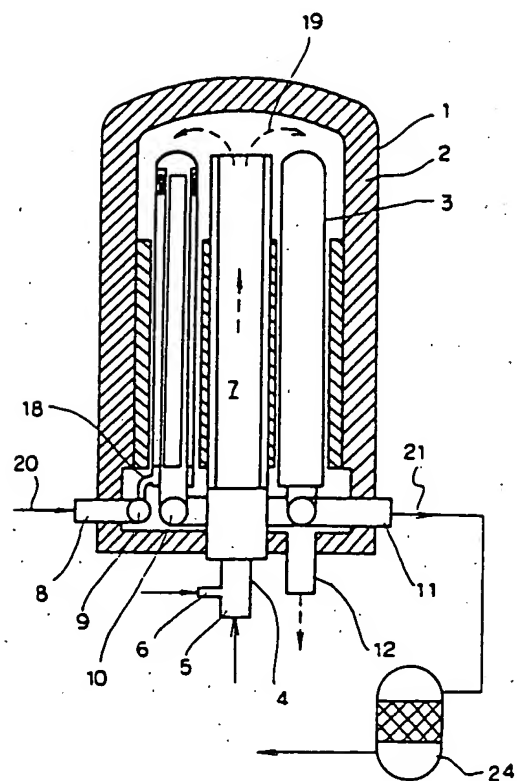
出願人 株式会社 東芝  
代理人 弁理士 須山 佐一



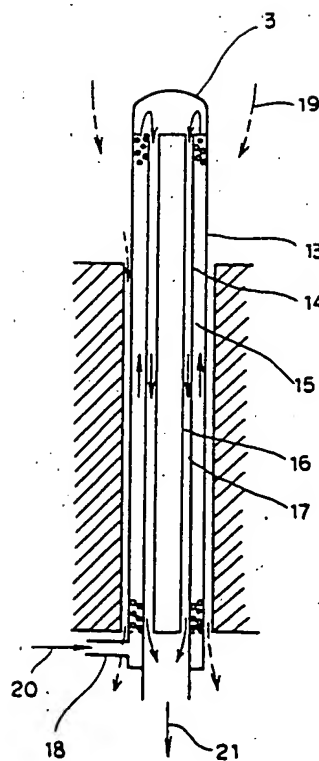
第1図



第 2 図



第 3 図



第 4 図